

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

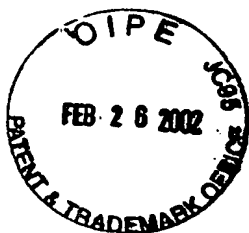
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number : 10-308277  
 (43) Date of publication of application : 17. 11. 1998

(51) Int. Cl. H05B 33/14  
 C09K 11/06

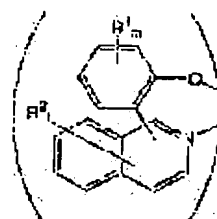
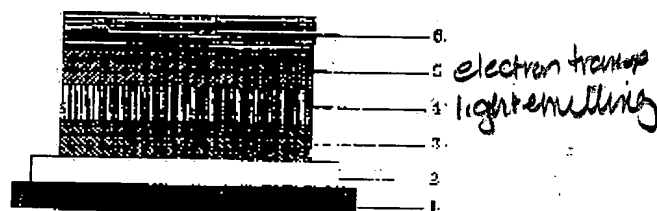
(21) Application number : 09-116979 (71) Applicant : NEC CORP  
 (22) Date of filing : 07. 05. 1997 (72) Inventor : AZUMAGUCHI TATSU  
 ISHIKAWA HITOSHI  
 ODA ATSUSHI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

## (57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To increase the light emission luminance, and to improve the stability at the time of use by adding o-hydroxyphenyl isoquinoline compound as single or a mixture with other material to a layer to be pinched between a pair of conductive layers.

SOLUTION: o-hydroxyphenyl isoquinoline compound is expressed with a formula. In the formula, M means n-valency metal ion, R<sup>1</sup>, R<sup>3</sup> means substituent or non-substituent alkyl group, a substituent or non-substituent aryl group, halogen group, nitro group, cyano group, aryl group, a substituent or non-substituent amino group, mercapto group, hydroxyl group, carboxyl group, a substituent or non-substituent alkoxy group, a substituent or non-substituent alkoxy carbonyl group. (n) means 1-4, (m) means 0-4, (l) means 0-6. A metal complex with various metal ion is formed so as to be used for any one of a light emitting layer 4, an electron transporting layer 5, a positive hole transporting light emitting layer 7 and an electron transporting light emitting layer 8.



RECEIVED  
 MAR-6 2002  
 TC 2800 MAIL ROOM

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 07. 05. 1997  
 [Date of sending the examiner's decision of rejection]  
 [Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]  
 [Date of final disposal for application]  
 [Patent number] 2940514  
 [Date of registration] 18. 06. 1999

RECEIVED  
 MAR 14 2002  
 TC 1700

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998, 2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-308277

(43) 公開日 平成10年(1998)11月17日

(51) Int.Cl.<sup>5</sup>  
H 0 5 B 33/14  
C 0 8 K 11/06

識別記号

F I  
H 0 5 B 33/14  
C 0 8 K 11/06

Z

審査請求 有 請求項の数 2 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平9-116979

(22) 出願日 平成9年(1997)5月7日

(71) 出願人 000004237

日本電気株式会社  
東京都港区芝五丁目7番1号

(72) 発明者 京口 達

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(72) 発明者 石川 仁志

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(72) 発明者 小田 敏

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(74) 代理人 弁理士 京本 直樹 (外2名)

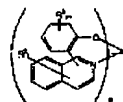
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセント素子

(57) 【要約】

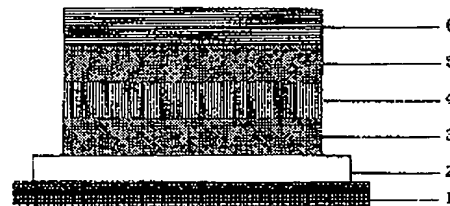
【課題】 高輝度かつ安定性に優れた有機EL素子を提供する。

【解決手段】 一般式(1)

【化1】



(式中、Mはn価の金属イオンを表す。R¹、R²は置換または無置換のアルキル基、置換または無置換のアリール基、ハロゲン、ニトロ基、シアノ基、アシル基、置換または無置換のアミノ基、メルカプト基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、置換または無置換のアルコキシ基、置換または無置換のアルコキシカルボニル基を表す。nは1~4、mは0~4、lは0~6のそれぞれいづれか。)で表されるo-ヒドロキシフェニルイソキノリン金属錯体を含む薄膜層を用いて素子を作製する事により、高輝度発光が得られると共に、安定性に優れた有機EL素子が得られる。



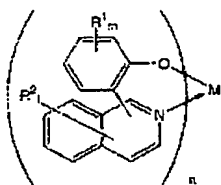
(2) 特開平10-308277

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対の導電層間に、少なくとも発光層を含有する有機エレクトロルミネッセント素子において、前記導電層間に挟持される層に、一般式(1)で示されるo-ヒドロキシフェニルイソキノリン化合物を単独、もしくは他の材料と混合して含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子。

【化1】



(式中、Mはn価の金属イオンを表す。R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は置換または無置換のアルキル基、置換または無置換のアリール基、ハロゲン、ニトロ基、シアノ基、アリル基、置換または無置換のアミノ基、メルカプト基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、置換または無置換のアルコキシ基、置換または無置換のアルコキシカルボニル基を表す。nは1~4、mは0~4、lは0~6のそれぞれいづれかを示す。)

【請求項2】 金属錯体を形成する金属としてはアルミニウム、マグネシウム、ベリリウム、ケイ素、スカンジウム、チタニウム、バナジウム、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ガリウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、ランタノイド元素、アクチノイド元素のいずれかより選ばれた材料であることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、平面光源や表示素子に利用される有機エレクトロルミネッセント(EL)素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 EL素子は、自発光型の平面型表示素子としての用途が有望視されている。中でも有機物質を用いた有機EL素子は、無機ELのような、交流駆動でかつ高電圧が必要といった制約がなく、また有機化合物の多様性により、多色化が容易であると考えられることから、盛んに開発が行われている。

【0003】 しかし、従来の有機EL素子は、無機EL素子に比べて発光強度が低く、特性劣化が著しかったため、実用化には至っていなかった。近年、10V以下の低電圧で発光する高い発光効率を持った、有機化合物の薄膜層型の有機EL素子が報告され、感心を集めている(アプライド・フィジックス・レターズ(Applied Physics Letters)、51巻、9

2

13頁、1987年参照)。

【0004】 この方法では、金属キレート錯体を蛍光体層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6~7Vの直流電圧で輝度は数100cd/m<sup>2</sup>、最大発光効率は1.5lm/Wを達成して、実用領域に近い性能を持っている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 現在までの有機EL素子は構成、材料の改善により発光強度は改良されているが、未だ充分な発光強度には達していない。また、素子の寿命に閉しても同様で、実用に十分な安定性を有するものは得られていない。従って、より大きな発光強度と優れた使用時安定性を併せ持つ、有機EL素子の開発が望まれているのが現状である。

【0006】 本発明は、発光強度が大きく、使用時の安定性に優れた有機EL素子を提供することを目的とするものである。

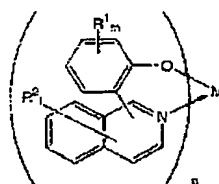
【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、発光強度が大きく、使用時の安定性に優れた有機EL素子の構成を見出すべく鋭意検討を重ねた結果、特定の化合物を有機EL素子に含有させることにより、これらの要件を満たした有機EL素子が得られる事を見出した。

【0008】 すなわち、本発明は一対の導電層間に、少なくとも発光層を含有する有機エレクトロルミネッセント素子において、導電層間に挟持される層に、一般式(1)で示されるo-ヒドロキシフェニルイソキノリン化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子を提供する事を目的とするものである。

【0009】

【化2】



【0010】 (式中、Mはn価の金属イオンを表す。R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は置換または無置換のアルキル基、置換または無置換のアリール基、ハロゲン、ニトロ基、シアノ基、アリル基、置換または無置換のアミノ基、メルカプト基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、置換または無置換のアルコキシ基、置換または無置換のアルコキシカルボニル基を表す。nは1~4、mは0~4、lは0~6のそれぞれいづれかを示す。)

【0011】 以下、本発明を詳細に説明する。

【0012】 本発明に用いられるo-ヒドロキシフェニルイソキノリンは、種々の金属イオンと金属錯体を形成する。o-ヒドロキシフェニル基の位置は特に限定され

(3)

特開平10-308277

3

るものではない。金属錯体を形成する金属としてはアルミニウム、マグネシウム、ベリリウム、ケイ素、スカンジウム、チタニウム、バナジウム、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ガリウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、ランタノイド元素、アクチノイド元素が挙げられるがこれらに限られるものではない。

【0013】図1～5に、本発明の有機EL素子の構造例の断面図を模式的に示す。1は基板、2は陽極となる伝導層、3は正孔輸送層、4は発光層、5は電子輸送層、6は陰極となる導電層、7は正孔輸送性発光層、8は電子輸送性発光層をそれぞれ表している。

【0014】前記一般式(1)で表される金属錯体は、発光層4、電子輸送層5、正孔輸送性発光層7、電子輸送性発光層8のいずれにも用いても高輝度な安定性の高い有機EL素子を得る事ができる。また、前記金属錯体は発光層4、電子輸送層5、正孔輸送性発光層7、電子輸送性発光層8のいずれかに含まれていれば、同一素子内の別の層に含まれていなくても良い。

【0015】基板1は本発明の有機EL素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板、樹脂フィルムや樹脂プレート等が用いられる。

【0016】基板1上の陽極となる導電層2には、通常、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、パラジウム、テルル、銀、金等の金属、およびそれらの合金、酸化インジウム、酸化スズ等の金属酸化物やヨウ化銅、炭素、あるいは導電性高分子などにより構成される。導電層の形成は真空蒸着法、スパッタリング法などの乾式成膜法で行われる事が多いが、適当なバインダー樹脂溶液に上記電極材料を分散させてディップコート法やスピンコート法などの湿式成膜法も使用できる。この際、使用する溶剤には、特に制限は無い。さらに、導電性高分子の場合は、電界重合により直接基板上に薄膜を形成する事も可能である。この導電層は複数の薄膜によって形成する事も可能である。

【0017】陰極となる導電層6には、前記導電層2用の材料を用いる事が可能であるが、効率よく電子注入を行う必要があるため、スズ、マグネシウム、インジウム、アルミニウム、銀等の金属またはそれらの合金が好ましい。この導電層6も導電層2と同様、複数の薄膜によって形成する事も可能である。

【0018】導電層2、6共に特に膜厚に制限は無いが、発光した光を基板に垂直な方向に取り出す場合、少なくとも一方の導電層の透光率は60%以上、好ましくは80%以上であることが望ましい。この場合、厚みは通常5～1000nm、好ましくは10～500nm程度である。

【0019】正孔輸送層3には、種々の正孔輸送材料が用いられる。この正孔輸送材料としては、導電層2からの正孔の注入効率が高いと同時に、正孔を輸送する能力

4

も高いものが望ましい。このような正孔輸送材料としては、公知の各種正孔輸送材料が使用可能である。例えば、低分子材料としてはトリフェニルアミン、ビストリフェニルアミンなどの芳香族アミン系化合物やヒドラゾン系化合物等が挙げられる。また、高分子材料としてはポリビニルカルバゾールや、特開平8-54833号公報、特開平8-269133号公報に示される芳香族アミン系骨格を側鎖にもつ高分子も使用可能である。また、正孔輸送性を持つ無機材料を使用する事もできる。

これらの材料、化合物は、単独でも混合でも用いる事ができる。また、必要に応じて適当なバインダー樹脂中に分散させた状態でも用いる事が可能である。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステルなどが挙げられる。高分子正孔輸送材料をバインダーとして用いることも可能である。

【0020】上記の正孔輸送材料は、真空蒸着法、塗布法により形成される。いずれの場合も、正孔輸送性、正孔注入性、成膜性を向上させるために各種添加剤を添加して用いても良い。

【0021】一般式(1)で表される金属錯体材料は、単独でも他の材料との混合でも、使用可能である。混合する材料としては、種々の材料が使用可能である。発光層4に用いる場合には、アントラセン、ナフタレン、スチルベン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、ピフェニル及びそれらの誘導体等の蛍光材料、ベンゾフラン誘導体、クマリン誘導体等の色素があげられるが、これらに限定されるものではない。電子輸送層5に用いる場合には、オキサジアゾール誘導体やトリアゾール誘導体などの有機電子輸送材料、キノリノールアルミニウム錯体等の金属錯体化合物、n型水素化アモルファスシリコンカーバイド、n型硫化亜鉛などの無機電子輸送材料などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。正孔輸送性発光層7に用いる場合には正孔輸送層3に用いる材料と発光層4に混合可能な材料のいずれも用いることが可能である。電子輸送性発光層8に用いる場合には、電子輸送層5に用いる材料と発光層4に用いる材料のいずれも用いる事が可能である。

【0022】発光層4、電子輸送層5、正孔輸送性発光層7、電子輸送性発光層8はいずれも、正孔輸送層3と同様の方法で形成される。

【0023】

【発明の実施の形態】以下、実施例により本発明について、更に具体的に説明するが、本発明は、その主旨を越えない限り以下の実施例に限定されるものではない。

【0024】(製造例1-10)

1-(o-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンはGeissmanらの方法(ジャーナル・オブ・オーガニック・ケミストリ、11巻、741頁、1946年)に従い合成した。これを用い、W. D. JohnstonとH. Freiserの手法(ジャーナル・オブ・ザ・ア

(4)

特開平10-308277

5

メリカン・ケミカル・ソサイエティ、74巻、5239頁、1952年)に従って、表1に示した金属原子を含有した、1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を合成した。

【0025】

【表1】

層番号	金属
1	アルミニウム
2	絶縁
3	絶縁
4	クロム
5	絶縁
6	ニッケル
7	コバルト
8	セリウム
9	マンガン
10	水酸

【0026】

【実施例】

(実施例1) 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルを真空蒸着して膜厚60nmの正孔輸送層を得た。次いで、1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して20nmの発光層を得た。その上に8-ヒドロキシキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して50nmの電子輸送層を得た。さらにその上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚200nmの導電層を形成して、図1に示す有機EL素子を得た。この素子は良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0027】(実施例2-10) 1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体に代えて発光層に製造例2~10で得られた1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を使用する以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製した。これらの素子はいずれも良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0028】(実施例11) 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルを真空蒸着して膜厚60nmの正孔輸送層を得た。次いで、1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して50nmの電子輸送性発光層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚200nmの導電層を形成して、図2に示す有機EL素子を得た。この素子は良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0029】(実施例12-20) 1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体に代えて発光層に製造例2~10で得られた1-(*o*-ヒド

6

ロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を使用する以外は、実施例11と同様の方法で有機EL素子を作製した。これらの素子はいずれも良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0030】(実施例21) 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルと1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して膜厚60nmの正孔輸送性発光層を得た。次いで8-ヒドロキシキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して50nmの電子輸送層を得た。さらにその上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚200nmの導電層を形成して、図3に示す有機EL素子を得た。この素子は良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0031】(実施例22-30) 1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体に代えて発光層に製造例2~10で得られた1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を使用する以外は、実施例21と同様の方法で有機EL素子を作製した。これらの素子はいずれも良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0032】(実施例31) 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルと1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体を真空蒸着して膜厚70nmの正孔輸送性発光層を得た。次いでマグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚200nmの導電層を形成して、図4に示す有機EL素子を得た。この素子は良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0033】(実施例32-40) 1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体に代えて発光層に製造例2~10で得られた1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を使用する以外は、実施例31と同様の方法で有機EL素子を作製した。これらの素子はいずれも良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0034】(実施例41) 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルを真空蒸着して膜厚60nmの正孔輸送層を得た。次いで、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム金属錯体とテトラフェニルブタジエンを真空蒸着して20nmの発光層を得た。その上に1-(*o*-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニ

(5)

特開平10-308277

7

8

ウム金属錯体を真空蒸着して50nmの電子輸送層を得た。さらにその上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚200nmの導電層を形成して、図1に示す有機EL素子を得た。この素子は良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0035】(実施例42-50)1-(o-ヒドロキシフェニル)-イソキノリンアルミニウム金属錯体に代えて発光層に製造例2~10で得られた1-(o-ヒドロキシフェニル)-イソキノリン金属錯体を使用する以外は、実施例21と同様の方法で有機EL素子を作製した。これらの素子はいずれも良好な有機EL発光特性を示した。また1000時間連続発光させた後も、初期と変わらない良好な発光特性を示した。

【0036】

【発明の効果】本発明により、高輝度であり安定性に優\*

\*れた有機EL素子を得る事ができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機EL素子の概略構造を表す断面図である。

【図2】有機EL素子の概略構造を表す断面図である。

【図3】有機EL素子の概略構造を表す断面図である。

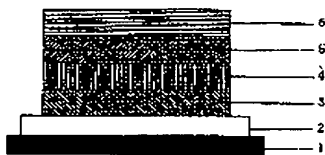
【図4】有機EL素子の概略構造を表す断面図である。

【図5】有機EL素子の概略構造を表す断面図である。

【符号の説明】

- 1 支持基板
- 2 陽極となる導電層
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 陰極となる導電層
- 7 正孔輸送性発光層
- 8 電子輸送性発光層

【図1】



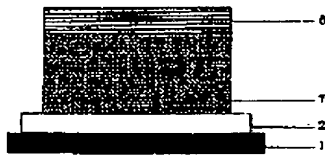
【図2】



【図3】



【図4】



【図5】

